# This Page Is Inserted by IFW Operations and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

# IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents will not correct images, please do not report the images to the Image Problems Mailbox.

**PCT** 

WELTORGANISATION F Internationales Bilro

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE

INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) (51) Internationale Patentklassifikati n 6: **WO 96/23778** (11) Internationale Veröffentlichungsnummer: C07D 251/62, 251/60 A1 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 8. August 1996 (08.08.96) (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP96/00045 (81) Bestimmungsstaaten: AM, BR, BY, CN, JP, KR, NZ, PL, RO, RU, TT, UA, UZ, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, (22) Internationales Anmeldedatum: 8. Januar 1996 (08.01.96) DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE). (30) Prioritätsdaten: Veröffentlicht A 186/95 3. Februar 1995 (03.02.95) Mit internationalem Recherchenbericht. AT (71) Anmelder: AGROLINZ MELAMIN GMBH [AT/AT]; St. Peter-Strasse 25, A-4021 Linz (AT).

(74) Anwalt: KUNZ, Ekkehard; St. Peter-Strasse 25, A-4021 Linz

(72) Erfinder: MÜLLNER, Martin; Grabnerstrasse 33, A-4020 Linz (AT). FINGRHUT, Helmut; Stechergasse 33, A-4020 Linz (AT). CANZI, Lorenzo, Via Luosi, 2, I-20131 Milano (IT). COUFAL, Gerhard; Via Mirabello, 12, I-22070 Appiano

- (54) Title: PROCESS FOR PURIFYING MELAMINE
- (54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR REINIGUNG VON MELAMIN

#### (57) Abstract

A process for purifying melamine in which unpurified melamine is kept for from 5 minutes to 20 hours at a partial ammonia pressure of 150 to 400 bar within a temperature range from 280 to 430 °C, whereafter it is first rapidly cooled to room temperature and then the pressure is released, or it is cooled and the pressure is released simultaneously, pure melamine being obtained in powder form.

#### (57) Zusammenfassung

Gentile (IT).

Verfahren zur Reinigung von Melamin, bei welchem verunreinigtes Melamin für 5 Minuten bis zu 20 Stunden bei einem Ammoniakpartialdruck von 150 bis 400 bar in einem Temperaturbereich von 280 bis 430 °C verweilen gelassen wird, worauf zuerst rasch auf Raumtemperatur abgektihlt und anschließend entspannt oder gleichzeitig abgektihlt und entspannt wird und reines Melamin in Pulverform erhalten wird.

#### LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AM	Armenien	GB	Vereinigtes Königreich	MX	Mexiko
AT	Osterreich	GE	Georgien	NE	Niger
ΑU	Australien	GN	Guinea	NL	Niederlande
BB	Barbados	GR	Griechenland	NO	Norwegen
BE	Belgien	HU	Ungara	NZ	Neusecland
BF	Burkina Paso	18	Irland	PL	Polen
BG	Bulgarien	IT	Italien	PT	Portugal
BJ	Benin	JP	Japan	RO	Rumânien
BR	Brasilien	KE	Kenya	RU	Russische Pöderation
BY	Belarus	KG	Kirgisistan	SD	Sudan
CA	Kanada	КР	Demokratische Volksrepublik Korea	SE	Schweden
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KR	Republik Korea	SG	Singapur
CG	Kongo	KZ	Kasachstan	12	Slowenien
CH	Schweiz	u	Liechtenstein	SK	Slowakei
CI	Côte d'Ivoire	LK	Sri Lanka	SN	Senegal
CM	Kamerun	LR	Liberia	SZ	Swasiland
CN	China	1.K	Litauen	TD	Techad
CS	Tschechoslowakei	LU	Luxemburg	TG	Togo
CZ	Tschechische Republik	LV	Lettland	TJ	Tadschikistan
DE	Deutschland	MC	Monaco	TT	Trinidad und Tobago
DK	Dinemark	MD	Republik Moldau	UA	Ukraine
EE	Estland	MG	Madagaskar	UG	Uganda
ES	Spanien	ML	Mali	US	Vereinigte Staaten von Amerika
FI	Finnland	MN	Mongolei	UZ	Usbekistan
FR	Prankreich	MR	Mauretanien	VN	Vietnam
GA	Gabon	MW	Malawi		

WO 96/23778 PCT/EP96/00045

#### Verfahren zur Reinigung von Melamin

Aus der Literatur ist bereits eine Vielzahl von Verfahren zur Herstellung von Melamin bekannt. Ein bevorzugtes Ausgangsmaterial ist dabei Harnstoff, der entweder bei hohem Druck und nichtkatalytisch oder bei niedrigem Druck und unter Verwendung eines Katalysators zu Melamin, Ammoniak und CO2 umgesetzt wird. Es ist auch bekannt, daß bei diesen Verfahren, insbesondere bei den Hochdruckverfahren, verschiedene Nebenprodukte bzw. Verunreinigungen, wie beispielsweise Melem, Melam, Ammelin, Ammelid oder Ureidomelamin, entstehen, die die Reinheit des Melamins beeinträchtigen.

Die Aufarbeitung des durch ein Hochdruckverfahren hergestellten Melamins erfolgt beispielsweise nach US 3,116,294 (Montecatini) durch Abtrennung der CO2- und NH3-Abgase vom flüssigen Melamin, das anschließend, um noch gelöstes CO2 zu entfernen, im Gegenstrom mit NH3 behandelt, in einem weiteren Reaktor gesammelt und eine bestimmte Zeit darin verweilen gelassen wird. Die Trennkolonne und der zweite Reaktor werden dabei unter den gleichen Temperatur- und Druckbedingungen wie der Harnstoffreaktor, nämlich bei 250 bis 500°C und einem Druck von etwa 40 bis 150 bar, gehalten. Das so erhaltene Melamin wird aus dem zweiten Reaktor entnommen und durch Abschrecken mit Wasser oder durch Mischen mit kalten Gasen rasch abgekühlt. Die Reinheit von Melamin, das durch dieses Verfahren gewonnen wird, ist jedoch für viele Anwendungen, etwa bei der Herstellung von Melamin-Formaldehydharzen für Oberflächenbeschichtungen, nicht ausreichend, da insbesondere der Gehalt an Melem zu hoch ist. Wie aus CH 345.894 bekannt ist, sind Verunreinigungen wie Melem und Melam in Wasser und wäßrigen Alkalilösungen unlöslich bzw. schwer löslich, sodaß diese Verbindungen bei einer Umkristallisation von Melamin, beispielsweise im Anschluß an die Aufarbeitung gemäß Montecatini, nur schwer und mit Melaminverlusten aus dem zu reinigenden Melamin entfernt werden können.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es demnach ein Verfahren zu finden, bei welchem der Gehalt an Verunreinigungen, insbesondere an den in Wasser oder in wäßrigen Alkalilösungen unlöslichen oder schwer löslichen Verunreinigungen, ohne Melaminverluste d utlich reduzi rt werd n kann.

Unerwarteterweise konnte diese Aufgabe durch ein Verfahren gelöst werden, bei welchem verunreinigtes Melamin eine gewisse Zeit bei einem Ammoniakpartialdruck von über 150 bar bei einer Temperatur von über 280°C verweilen gelassen und anschließend rasch abgekühlt wird.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist daher ein Verfahren zur Reinigung von Melamin, das dadurch gekennzeichnet ist, daß verunreinigtes Melamin für 5 Minuten bis zu 20 Stunden bei einem Ammoniakpartialdruck von 150 bis 400 bar in einem Temperaturbereich von 280 bis 430°C verweilen gelassen wird, worauf zuerst rasch auf Raumtemperatur abgekühlt und anschließend entspannt oder gleichzeitig abgekühlt und entspannt wird und reines Melamin in Pulverform erhalten wird.

Das erfindungsgemäße Verfahren eignet sich zur Reinigung von Melamin, das in einem beliebigen aus dem Stand der Technik bekannten Prozeß anfällt und insbesondere Verunreinigungen wie Melem und Melam enthält. Das zu reinigende Melamin wird, im Falle, daß es in kristalliner Form oder als Pulver vorliegt, zuerst auf eine Temperatur innerhalb des Temperaturbereiches von 280 bis 430°C vorzugsweise auf oder über den Schmelzpunkt von Melamin bis 400°C, erwärmt und bei einem Ammoniakpartialdruck von über 150 bar für eine bestimmte Zeit in diesem Bereich verweilen gelassen. Liegt das zu reinigende Melamin bereits als Schmelze bzw. als Flüssigphase, wie beispielsweise im Anschluß an einen Hockdruckreaktor zur Melaminsynthese Harnstoffumsetzung vor, so kann diese Aufwärmphase entfallen, und die Temperatur der Schmelze wird auf den gewünschten Wert innerhalb des oben definierten Temperaturbereich gebracht.

Die Temperatur des zu reinigenden Melamins kann während der Verweilzeit des Melamins konstant gehalten werden, sie kann jedoch auch innerhalb des oben definierten Temperaturbereiches verändert werden. So kann die Temperatur beispielsweise kontinuierlich oder stufenweise innerhalb der Grenzen des Temperaturbereiches abgegenkt bzw. erhöht werden. Die Verwellzeit kann in einem weiten Bereich variieren. Sie hängt hauptsächlich vom gewünschten Endwert an Verunreinigungen, sowie vom Ammoniakpartialdruck und von wirtschaftlichen Faktoren ab und liegt zwischen 5 Minuten und 20 Stunden, bevorzugt zwischen 10 Minuten und 10 Stunden, besonders bevorzugt zwischen 30 Minuten bis 4

Stunden. Längere Verweilzeiten sind gewünschtenfalls auch möglich. Der Ammoniakpartialdruck kann ebenfalls in einem großen Bereich variieren und liegt zwischen 150 und 400 bar. Bevorzugt wird ein Ammoniakpartialdruck bis 360 bar, besonders bevorzugt bis 300 bar eingestellt. Es ist auch möglich den Druck während der Verweilzeit zu variieren. Weiters ist es möglich, andere unter den Reaktionsbedingungen inerte Gase, z. B. Stickstoff, zuzumischen. Nach Ende der Verweilzeit kann, je nach den technischen Gegebenheiten, zuerst abgekühlt und dann entspannt, oder gleichzeitig entspannt und abgekühlt werden. Das Abkühlen auf Raumtemperatur erfolgt beispielsweise durch Abschrecken mit einem kalten flüssigen Medium, etwa mittels Wasser oder flüssigem Ammoniak oder durch Mischen mit kalten Gasen.

Melamin wird durch das erfindungsgemäße Verfahren in kristalliner Form bzw. als Pulver erhalten und weist insbesondere einen deutlich reduzierten Gehalt an Melem und Melam auf.

Das erfindungsgemäße Verfahren kann sowohl diskontinuierlich als auch kontinuierlich durchgeführt werden.

Das erfindungsgemäße Verfahren kann an jeden beliebigen, aus dem Stand der Technik bekannten Melaminprozeß gekoppelt werden. In einer bevorzugten Ausführungsform wird das erfindungsgemäße Verfahren mit einem der aus dem Stand der Technik bekannten Hochdruckprozesse, wie etwa in Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, 5<sup>th</sup> Edition, Vol. A-16, pp 174-179 beschrieben, kombiniert. Besonders bevorzugt wird das erfindungsgemäße Verfahren im Anschluß an bereits bekannte Aufarbeitungsschritte der Hochdruckverfahren durchgeführt. Diese Aufarbeitungsschritte beinhalten

- a) Abtrennen des bei der Umsetzung von Harnstoff erhaltenen NH<sub>3</sub>/CO<sub>2</sub>-Gasgemisches vom flüssigen Melamin, sowie
- b) Reduktion des im Melamin gelösten CO<sub>2</sub> durch Einbringen von NH<sub>3</sub>. Diese Aufarbeitungsschritte sind beispielsweise in US 3,116,294 beschrieben. Das erfindungsgemäße Verfahren kann dabei somit direkt an den Reaktor für die Harnstoffumsetzung anschließen oder im Anschluß an die oben beschriebenen Aufarbeitungsschritte durchgeführt werden, wobei die Aufarbeitung sowohl die Schritte a) in Kombination mit b), als auch nur einen dieser Schritte umfassen kann.

#### Beispiel 1 - 7

In einen Miniautoklaven mit 10 ml Volumen wurde eine bestimmte Menge (EW) an Melamin mit einem definierten Anfangsgehalt an Verunreinigungen sowie die zur Aufrechterhaltung eines bestimmten Druckes p nötige Ammoniakmenge eingebracht.

Anschließend wurde der Autoklav auf eine Temperatur T durch Eintauchen in ein Wärmeträgermedium rasch aufgeheizt und t Minuten bei dieser Temperatur verweilen gelassen. Danach wurde der Autoklav rasch durch Eintauchen in kaltes Wasser abgekühlt und dann entspannt. Das so gereinigte Melamin wurde auf den Endgehalt an Verunreinigungen, insbesondere an Melem, untersucht. Die Verfahrensparameter, wie Einwaage an Melamin (EW), Druck p, Zeit t, Temperatur T, Anfangsgehalt an Melem (MEo), Melam (MAo), Ammelin (ANo), Ammelid (ADo), und Ureidomelamin (UMo), sowie der Endgehalt an Melem (ME), Melam (MA), Ureidomelamin (UM) und teilweise an Ammelin (AN) und Ammelid (AD) sind aus Tabelle 1 ersichtlich.

Bsp	. EW	р	T	t	MEo	ME	MAo	MA	UMo	UM	ANo .	AN	ADo	AD
	(mg)	(bar)	(°C)	(min)	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm
1	268	350	290	10	5600	1100	18300	320	10600	170	-	-	-	-
2	268	350	290	100	5600	150	18300	220	10600	290	-	-	-	•
3	80	350	370	180	13000	90	22000	1600	3300	710	6700	350	1000	150
4	51	250	400	180	13000	130	22000	2000	3300	820	6700	400	1000	120
5	159	250	340	10080	13000	40	22000	1200	3300	410	6700	290	1000	50
6	176	250	310	960	13000	40	22000	930	3300	420	6700	460	1000	50
7	159	250	340	10	13000	330	22000	3600	3300	590	6700	830	1000	150
8	126	200	330	100	12000	190	-	-	•	-	•	-	•	-
9	115	200	400	60	16000	980	-	-	-	-	-	-	•.	•
10	113	200	370	100	12000	450	-	-	-	-	-	•	-	-
11	90	150	370	240	16000	670	•	-	•	-	-	-	-	-
12	84	150	340	1740	12000	270	-	-		-	-	-	-	-
13	67	150	350	180	12000	890	-	-	-	-	-	-	-	-

<sup>-</sup> nicht bestimmt

#### Patentansprüche

- 1. Verfahren zur Reinigung von Melamin, dadurch gekennzeichnet, daß verunreinigtes Melamin für 5 Minuten bis zu 20 Stunden bei einem Ammoniakpartialdruck von 150 bis 400 bar in einem Temperaturbereich von 280 bis 430°C verweilen gelassen wird, worauf zuerst rasch auf Raumtemperatur abgekühlt und anschließend entspannt oder gleichzeitig abgekühlt und entspannt wird und reines Melamin in Pulverform erhalten wird.
- Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß Melamin in einem Temperaturbereich zwischen den Schmelzpunkt von Melamin und 400°C verweilen gelassen wird.
- 3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Ammoniakpartialdruck von bis zu 360 bar eingestellt wird.
- 4. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Verweilzeit 10 Minuten bis zu 10 Stunden beträgt.
- 5. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Verfahren an einen Prozeß zur Herstellung von Melamin angeschlossen wird.
- Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Verfahren an einen Hochdruckprozeß zur Herstellung von Melamin aus Harnstoff angeschlossen wird.
- 7. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Verfahren im Anschluß an die Aufarbeitung eines Hochdruckverfahrens angeschlossen wird, wobei die Aufarbeitung die Schritte
  - a) Abtrennen des bei der Umsetzung von Harnstoff erhaltenen NH3/CO<sub>2</sub>-Gasgemisches vom flüssigen Melamin und/oder
  - b) Reduktion des im Melamin gelösten CO<sub>2</sub> durch Einbringen von NH<sub>3</sub> umfaßt.

#### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internacional Application No

		PCT/EP 96	/00045	
A. CLASS IPC 6	IFICATION OF SUBJECT MATTER C07D251/62 C07D251/60			
According t	to International Patent Classification (IPC) or to both national classi	fication and IPC		
B. FIELDS	SEARCHED			
Minimum d IPC 6	documentation searched (classification system followed by classification CO7D	ion symbols)		
Documenta	tion searched other than minimum documentation to the extent that i	such documents are included in the fields i	cerched	
Electronic d	data base consulted during the international search (name of data bas	e and, where practical, search terms used)		
C. DOCUN	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the re	elevant passages	Relevant to claim No.	
Y	US,A,3 116 294 (MARULLO ET AL.) 3 December 1963 cited in the application see in particular example 1	31	1-7	
Y	EP,A,O 612 560 (BIZZOTTO WLADIMIF August 1994 "Separation Sector"	80) 31	1-7	
	see column 7 - column 8			
Y	WO,A,95 01345 (KEMIRA OY; TURUNEN (FI); OINAS PEKKA (FI)) 12 Januar see abstract	I ILKKA ry 1995	1-7	
Y	US,A.3 484 440 (KOKUBO ET AL.) 16		1-7	
	see column 2, line 65 - column 3,	, line 20		
	•	·/		
X Furt	ther documents are listed in the continuation of box C.	Patent family members are listed	in annex.	
'A' docum	stegories of cited documents : nent defining the general state of the art which is not lered to be of particular relevance	"T" later document published after the int or priority date and not in conflict w cited to understand the principle or t invention	ith the application but	
filing	document but published on or after the international date date the international date that the document on priority claim(s) or	"X" document of particular relevance; the cannot be considered novel or canno involve an inventive step when the d	t be considered to	
which citate	is cited to establish the publication date of another in or other special reason (as specified) sent referring to an oral disclosure, use, exhibition or	"Y" document of particular relevance; the cannot be considered to involve an it	claimed invention eventive step when the	
other	means ent published prior to the international filing date but	document is combined with one or more other such docu- ments, such combination being obvious to a person skilled in the art.  *&* document member of the same patent family		
	han the priority date claimed  actual completion of the international search	Date of mailing of the international s		
1	6 April 1996	03.05.96		
Name and	mailing address of the ISA  European Patent Office, P.B. 5818 Patentiaan 2	Authorized officer		
	NL - 2220 HV Rijswijk Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Faz (+ 31-70) 340-3016	Steendijk, M		

2



#### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internacional Application No PCT/EP 96/00045

Category * Citation of docum	ITS CONSIDERED TO BE RELEVANT nent, with indication, where appropriate, of the relevant passages	
	nent, with indication, where appropriate, of the relevant passages	
Y US.A.3		Relevant to claim No.
January cited i	637 686 (KOKUBO RYO ET AL) 25 1972 n the application umm 2, line 25 - line 64	1-7
PER L'II July 19	9 722 (MONTECATINI SOCIETA GENERALE NDUSTRIA MINARARIA E CHIMICA) 3 58 eite 2: "example"	1-7
A 'Ullman Chemisti 1990 , V cited in	nns Encyclopedia of Industrial ry, 5th edition, vol A16' VCH VERLAGSGESELLSCHAFT, WEILHEIM n the application n 174 - page 179	1-7

2



Information on patent family members

Internauonal Application No PCT/EP 96/00045

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date	
US-A-3116294		NONE			
EP-A-0612560	31-08-94	AT-T- DE-D- US-A-	132392 69400047 5486339	15-01-96 15-02-96 23-01-96	
WO-A-9501345	12-01-95	FI-A-	933033	02-01-95	
US-A-3484440	16-12-69	DE-A- FR-A-	1695564 1530957	06-05-71 27-11-68	
US-A-3637686	25-01-72	NONE			
GB-A-800722		NONE			

#### INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internauonales Aktenzeichen

		PCT/EP 96	5/00045
A. KLASS IPK 6	SIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES C07D251/62 C07D251/60		<u>, , , , , , , , , , , , , , , , , , , </u>
Nach der I	nternationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen å	Klassifikation und der IPK	
B. RECHE	ERCHIERTE GEBIETE		
Recherchier IPK 6	rter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssym C07D	ibole)	
Recherchier	rte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, i	soweit diese unter die recherchierten Gebie	te fallen
Während de	er internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (i	Name der Datenbank und evtl. verwendete	e Suchbegriffe)
C. ALS W	ESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategone*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Anga	sbe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	US,A,3 116 294 (MARULLO ET AL.) 31.Dezember 1963 in der Anmeldung erwähnt see in particular example 1		1-7
Y	EP,A,0 612 560 (BIZZOTTO WLADIMI) 31.August 1994 "Separation Sector" siehe Spalte 7 - Spalte 8	RO)	1-7
Υ	WO,A,95 01345 (KEMIRA OY; TURUNER (FI); OINAS PEKKA (FI)) 12.Januar siehe Zusammenfassung	N ILKKA r 1995	1-7
Y	US,A,3 484 440 (KOKUBO ET AL.) 16 1969		1-7
	siehe Spalte 2, Zeile 65 - Spalte 20	e 3, Zeile	
	<del></del>	-/	
	tere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu ehmen	X Siehe Anhang Patentfamilie	
'A' Veröffe aber na 'E' älteres l	Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : entlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, scht als besonders bedeutsam anzusehen ist Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen idedanum veröffentlicht worden ist	"T" Spätere Veröffentlichung, die nach den oder dem Prioritätsdatum veröffentlich Anmeldung nicht kollidiert, sondern n Erfindung zugrundeliegenden Prinzips Theone angegeben ist	ht worden ist und mit der nur zum Verständnis des der s oder der ihr zugrundeliegenden
'L' Veröffe scheine andere	mutichung, die georgnet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er- en zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer m im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden der die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie		lichung nicht als neu oder auf achtet werden nitung: die beanspruchte Erfindun;
O' Veröffe ene Be 'P' Veröffe	ührt) entichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, enutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht entlichung, die vor dem internationalen Ammeldodatum, aber nach	kann nicht als auf erfinderischer Tätig werden, wenn die Veröffendichung mi Veröffendichungen dieser Kategone is diese Verbindung für einen Fachmann "&" Veröffendichung, die Mitglied derselbe	it einer oder mehreren anderen n Verbindung gebracht wird und n naheliegend ist
	eanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist Abschlusses der internauonalen Recherche	Absendedatum des internationalen Re-	<del></del>
11	6.April 1996	03.05.	.96
Name und P	Postanschrift der Internationale Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 3818 Patentiaan 2	Bevollmächtigter Bediensteter	
	NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax (+ 31-70) 340-3016	Steendijk, M	



## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internacionales Aktenzeichen
PCT/EP 96/00045

C.(Fortsetz	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommende	Telle Betr. Anspruch Nr.
Y	US,A,3 637 686 (KOKUBO RYO ET AL) 25.Januar 1972 in der Anmeldung erwähnt siehe Spalte 2, Zeile 25 - Zeile 64	1-7
A	GB.A,800 722 (MONTECATINI SOCIETA GENERALE PER L'INDUSTRIA MINARARIA E CHIMICA) 3.Juli 1958 Siehe Seite 2: "example"	1-7
A	'Ullmanns Encyclopedia of Industrial Chemistry, 5th edition, vol A16' 1990 , VCH VERLAGSGESELLSCHAFT , WEILHEIM in der Anmeldung erwähnt siehe Seite 174 - Seite 179	1-7

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internauonales Aktenzeichen PCT/EP 96/00045

Im Recherchenbericht ngeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung	
US-A-3116294		KEINE			
EP-A-0612560	31-08-94	AT-T- DE-D- US-A-	132392 69400047 5486339	15-01-96 15-02-96 23-01-96	
WO-A-9501345	12-01-95	FI-A-	933033	02-01-95	
US-A-3484440	16-12-69	DE-A- FR-A-	1695564 1530957	06-05-71 27-11-68	
US-A-3637686	25-01-72	KEINE			
GB-A-800722		KEINE	******		